

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

(19) FEDERAL REPUBLIC OF GERMANY  
(10) UNEXAMINED PATENT APPLICATION DE 42 43 424 A1

(51) Intl. Cl.<sup>3</sup>: B 01 J 10/00

//B01D 53/36

(21) Registration No.: P 42 43 424.6

(22) Filing Date: December 18, 1992

(43) Disclosure Date: August 23, 1994

(71) Applicant: AUF Adlershofer Umweltschutztechnik und Forschungsgesellschaft mbH, 12489 Berlin Germany

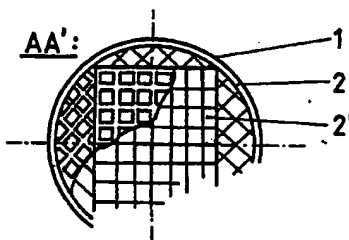
(72) Inventor: Dr. Helmut Stach, Berlin, Germany; Dr. Kurt Winkler, Berlin Germany

(54) METHOD AND APPARATUS FOR RUNNING A REACTION IN LOOP-TYPE  
BUBBLE COLUMNS WITH HONEYCOMB ELEMENTS

(57) The invention concerns a method and apparatus for running reactions in loop-type bubble columns with honeycomb elements, in which a liquid phase is brought into contact with gaseous-liquid media.

Effective conversion of a gas or vapor is achieved in the method on the catalytically active walls that are flowed against in parallel in a liquid by deliberate flow guiding with consideration of a consecutively running reaction  $A \rightarrow B \rightarrow C$ , in that during a rapid preliminary reaction  $A \rightarrow B$ , the gas-liquid up-current is guided in catalytically acting honeycomb elements through channels with an overall smaller contact surface, whereas during a rapid final reaction  $B \rightarrow C$ , interaction of the three phases occurs on a larger contact surface.

The area of application is especially conversion of synthesis gases to hydrocarbon compound to form gaseous-liquid products, hydrotreating of petrochemical feedstocks or environmental engineering for scrubbing-detoxifying final treatment of waste gases.



## DESCRIPTION

The invention concerns a method and apparatus for running reactions in loop-type bubble columns with honeycomb elements, in which a liquid phase is brought into contact with gaseous-liquid medium.

A number of gas-liquid reactors are already known in which the pressure energy of a gas and/or a liquid is utilized in appropriate dispersal devices, on the one hand, to produce intense size reduction of the phases to achieve effective mass transfer between them and, on the other hand, to produce loop-like driving of the liquid and its directed recirculation in the reactor. For this purpose, guide devices are inserted in the active reactor volumes, which have the task of adapting the hydrodynamically produced dwell time spectrum of the phase fraction to the time trends of the reaction processes between the charge, intermediates and end products in order to obtain high space-time yields (see W.-D. Deckwer, *Reaction Engineering in Bubble Columns*, O. Salle Verlag/Verlag Sauerländer, Frankfurt/Main, 1985).

A large number of these reaction processes, like hydrogenation, oxidation and carbonylation, only run effectively on noble metal catalysts. Monolithic honeycomb elements, on whose surface noble metal catalysts are fixed, also belong to the prior art in the field of catalyst supports (see Ch. N. Satterfield, *Heterogeneous Catalysis in Practice*, McGraw-Hill Book Comp., 1980).

In liquid phase reactions, mass transfer to the catalytically active surface of the support and adsorption of the charge or intermediate products on its active centers have an important effect on conversion in the reactor. With intensification of this transport effect, for example, by increasing the intensity of contact between the liquid and catalyst as a result of an increase in flow rate on the surface, its undesired effect, i.e., the reduction in reaction conversion, can be reduced. In reactions that run quickly enough, only short paths of the liquid reactants or reactants dissolved in liquid are required on the catalyst surface for high conversion, i.e., an overall small contact surface.

In slower reactions, on the other hand, a longer path connected with longer lasting contacts between the reactant and the catalyst is necessary, i.e., a larger contact surface.

These interactions between transport and reaction steps are still not reliably managed on catalytically acting honeycomb elements in the liquid phase, especially if consecutively running chemical reactions are involved with coupling of a rapid reaction step with a slow one, for example, a main or preliminary reaction and a final reaction. The reverse step, coupling of a slow reaction with a rapid one, also requires careful optimization of their time sequence in order to achieve optimal space-time yields. For a reaction between components A, B and C with the rate constants  $k_1$  and  $k_2$



it is characteristic and state of the art for different technical variants to accomplish the reactions nonspecifically and uninfluenced by  $k_1$  and  $k_2$  (both for a rapid preliminary reaction  $k_1 > k_2$  and a rapid final reaction  $k_1 < k_2$ ) in loop-type bubble columns filled with honeycomb elements.

The underlying task of the invention is to provide an apparatus for effective conversion of a gas or vapor partially dissolved in the liquid on the catalytically acting walls flowed against in parallel by deliberate flow and reaction guiding, in which geometrically different honeycomb elements are regularly arranged in a reactor of the column type so that an optimal ratio between two consecutively running reaction steps is set with minimal flow resistance.

This is achieved according to the invention in that honeycomb elements are layered one on the other in a gas-liquid reactor, aligned in alternating sequence and with their flow channels preferably vertical, so that by natural circulation of the liquid in the form of a flow loop, different parts of the wall surfaces come in contact with liquid and gas in time and position sequence and individual reaction steps can therefore occur with different influences. By layering of honeycomb elements of different cross-sectional dimension, a situation is achieved in which the total length of the flow channels and therefore the size of the contact surface required for a catalytically influenced reaction deviate in the upflow and downflow region of the loop. In a rapidly running reaction  $A \rightarrow B$  that follows a slower one  $B \rightarrow C$ , an overall smaller contact surface is required for the first step and a correspondingly larger surface for the second one. Technical implementation in the form of an apparatus occurs in loop guiding of the gas-liquid mixture, which is directed upwards in the vicinity of the wall of the reactor. On the other hand, in a slow reaction  $A \rightarrow B$ , to which a rapid reaction  $B \rightarrow C$  is connected, the reverse loop guiding is recommended, namely placing the upflow region in the central part of the layered honeycomb elements with a correspondingly larger contact surface.

The honeycomb elements are expediently configured so that, arranged alternating, they fill up the reactor cross section, on the one hand, but form intermediate spaces in the vicinity of the reactor wall, on the other, so that a free convective flow of liquid develops in them. In the interest of low flow resistance and optimally high recirculation rates, the channels of the honeycomb elements are aligned parallel to the main flow direction.

However, groups of channels can also be aligned obliquely in alternation, sloping toward the main axis of the reactor or sloping away from it, when a larger recirculation loop is to be subdivided once or repeatedly.

A main advantage of the apparatus consists of the fact that the forming reaction components, like B and C, can be partially or fully taken off as they form from parts of the flow loop, so that component B in a rapidly running reaction  $A \rightarrow B$  is taken off in the upper reactor part of the upflow region of the outer loop situated in the vicinity of the reactor wall. In a rapid reaction  $B \rightarrow C$ , on the other hand, the product C can be taken off in the lower part of the downflowing loop or also in the middle height sections of the reactor from the free spaces between the honeycomb elements.

The size of the channel cross sections and their free inside surface essentially determine the recirculation rate within the loop in its direction of rotation, in addition to the throughputs for gas and liquid. Optimal operating conditions can then expediently be adjusted for running consecutive reactions, in which optimal resistance values and surface fractions are preset in each of the two loop parts as a function of the corresponding task of the reaction.

## EXAMPLES

The invention is further explained with examples. The corresponding drawings show:

Figure 1 – the loop-type bubble column according to the invention with honeycomb elements with a peripheral upflow zone;

Figure 2 – a section AA' according to Figure 1;

Figure 3 – a variant according to Figure 1 with an eccentric upflow zone;

Figure 4 – a section BB' according to Figure 3;

Figures 5 and 6 – additional variants according to Figure 1 without and with lateral flow deflection;

Figure 7 – schematic view of the reactor according to Figure 1 with optimization parameters;

Figure 8 – parameters in the optimization field according to Figure 7.

The honeycomb elements 2 and 2' with parallel, straight or oblique channels that do not intersect each other are situated in axially alternating sequence in a loop-type bubble column with column shell 1 (Figures 1 to 5). The reactor has devices for gas guiding 3, 3' and for liquid guiding 4, 4' and is provided with a support grate 5 and a dispersal device 6. According to Figure 2, an alternating arrangement of the honeycomb elements 2 with a circular cross section with honeycomb elements 2' with a square cross section is expedient. In other variants (Figures 3 and 4) cylindrically bounded honeycomb elements 2 alternate with segment-like honeycomb elements 2'. In loop-type bubble columns of larger diameter, an arrangement of the honeycomb elements 2, 2' packed in layers is particularly favorable, in which the channels to the honeycomb elements 2' run parallel to the reactor main axis (Figure 5) or are aligned obliquely to it (at an acute angle) (Figure 6).

The action of the loop-type bubble column according to the invention is as follows: In the case of a rapid preliminary reaction  $A \rightarrow B$  catalyzed by the honeycomb elements ( $k_1 > k_2$ ), the gas creates a rising liquid flow via the gas feed 3 in the presence of a smaller flow resistance by rising in the regions of the reactor near the wall (Figure 1). The smaller contact surface in the channels of the honeycomb elements is sufficient for adequate intermediate formation B. Fractions of B can be taken off in the region of the liquid level via liquid guide 4'. For the slower final reaction  $B \rightarrow C$  ( $k_1 < k_2$ ), a larger contact surface is required, which is provided in the central part of the reactor. The end product C is removed from the reactor in the lower part (takeoff not shown) or partially recirculated into the upflow zone.

In the case of a slow preliminary reaction  $A \rightarrow B$  with a subsequent rapid final reaction, the flow channels are adapted via their cross-sectional surfaces, so that the central part of the reactor has smaller flow resistances than the edge zone. Liquid upflow occurs in the central reactor part with the correspondingly larger catalytically acting contact surface. B is again enriched in the upper part of the reactor and C, on the other hand, in the lower part of the reactor. According to Figure 3, this effect is achieved in reactors that deviate from a cylindrical geometry. According to Figure 5, regularly packed honeycomb elements 2, 2' are used in larger reactors for the objective according to the invention, in which several loops are formed (viewed over the reactor cross section). A situation is achieved through channels positioned obliquely to the reactor main axis by an acute angle in individual honeycomb elements 2', so that adjacent loops communicate with each other at the locations prescribed for this (Figure 6).

Figure 7 and Figure 8 show the parameters that decisively influence the method of function of the loop-type bubble column. In them:

$V_{gO}$  denotes the gas outlet velocity

$V_{lz}$  denotes the liquid recirculation rate,

$H_z$  denotes the height of the recirculation zone,

$D$  denotes the reactor diameter,

$\xi$ ,  $f$ ,  $sg$  denote the resistance characteristic and the surface fraction of the honeycomb element, as well as gas holdup, each referred to the upflow zone a and downflow zone b (see schematic view in Figure 7),

$\Delta\rho$  denotes the absolute density difference between these two zones,

$\rho_l$  denotes the liquid density,

$\mu$  denotes the flow coefficient.

According to the investigation of M. Kraume and P. Zehner, *Chemie-Ingenieur-Technik*, No. 4 (1989), "Modeling of fluid dynamics in bubble columns", the circulation rate in loop-type bubble columns without honeycomb elements is given by the relation

$$V_{lz} = \sqrt{\frac{2\Delta\rho}{f\xi\rho_1} gD (V_{gO} - \varepsilon_g V_{gs})}$$

By minimizing a corresponding flow coefficient with consideration of the upflow and downflow zones (a, b), optimal parameter relations are obtained that permit particularly favorable operation of the loop-type bubble column with honeycomb elements. In particular,  $(f_a/f_b)_{opt} = 1.3$  and  $(\xi_a/\xi_b)_{opt} = 2$  (Figure 8).

#### LIST OF REFERENCE NUMBERS

1	Column shell
2, 2'	Honeycomb elements
3, 3'	Gas guide
4, 4'	Liquid guide
5	Support grate
6	Dispersal device
A, A'; B, B'	Sections
a, b	Upflow and downflow zone
$V_{gO}$	Gas outlet velocity
$V_{lz}$	Liquid recirculation rate
D	Reactor diameter
H <sub>z</sub>	Height of the recirculation zone
$\xi, f, \varepsilon_g$	Resistance characteristic and surface fraction of the honeycomb elements and gas holdup, each referred to the upflow zone a and downflow zone b
$\Delta\rho$	Absolute density difference between these two zones
$\mu$	Flow coefficient
k	Rate constants
A, B, C	Reaction components

#### CLAIMS

1. Method for running reactions in loop-type bubble columns with honeycomb elements, in which a liquid phase is guided together with gaseous-liquid charge, intermediate and end products through the charge gas and/or an injected liquid in fractions in recirculation loops, penetrates, in so doing, orderly layered, structured, catalytically acting honeycomb elements

having channels, forming spatially separated upflow and downflow regions, for running consecutive reactions of the type  $A \rightarrow B \rightarrow C$  (with the corresponding reaction rate constants  $k_1$  and  $k_2$ ), characterized by the fact that

– in the case of a rapid preliminary reaction ( $A \rightarrow B$ ,  $k_1 > k_2$ ), upflow is guided to first channels with an overall smaller catalytic contact surface and additional free space and downflow occurs through second channels with a larger contact surface, the first and second channels being spatially separated from each other and combined into groups, and

– in the case of a rapid final reaction ( $B \rightarrow C$ ,  $k_1 < k_2$ ), upflow occurs in reverse through first channels with a larger contact surface and, for downflow, channels are provided that overall have a smaller contact surface with supplementation by additional free spaces.

2. Apparatus for execution of the method according to Claim 1, characterized by the fact that honeycomb elements (2) and (2') are accommodated within a reactor in an axial alternating sequence, which possess different sizes in cross-sectional dimensions and fully or partially fill up the column shell (1).

3. Apparatus according to Claim 2, characterized by the fact that intermediate spaces in the form of free spaces are situated between the column shell (1) and the honeycomb elements (2'), which are connected in alternation via the honeycomb elements (2) to one or more common axes of the reactor running parallel to the vertical column main axis.

4. Apparatus according to Claim 3, characterized by the fact that the axes of honeycomb elements (2') in comparison with the honeycomb elements (2) running parallel to the main axial direction, run at least partially in the overall combination of honeycomb elements (2) and (2') differently from parallel, preferably at an acute angle.

5. Apparatus according to Claims 2 to 4, characterized by the fact that honeycomb elements (2) and (2') have different channel dimensions and inner contact surfaces of different size.

6. Apparatus according to Claims 2 to 4, characterized by the fact that honeycomb elements (2) and (2') have different channel dimensions and inner contact surfaces of different size at least for the channels combined into groups but spatially separated from each other.

7. Apparatus according to Claims 2 to 6, characterized by the fact that the different flow zones, like the channels of the honeycomb elements (2) and (2') positioned in the upflow (a) and downflow zone (b) have resistance characteristics  $\xi$  and surface fractions  $f$  whose ratios are

determined by  $\frac{\xi_a}{\xi_b} = 2$  and  $\frac{f_a}{f_b} = 1.2$ .



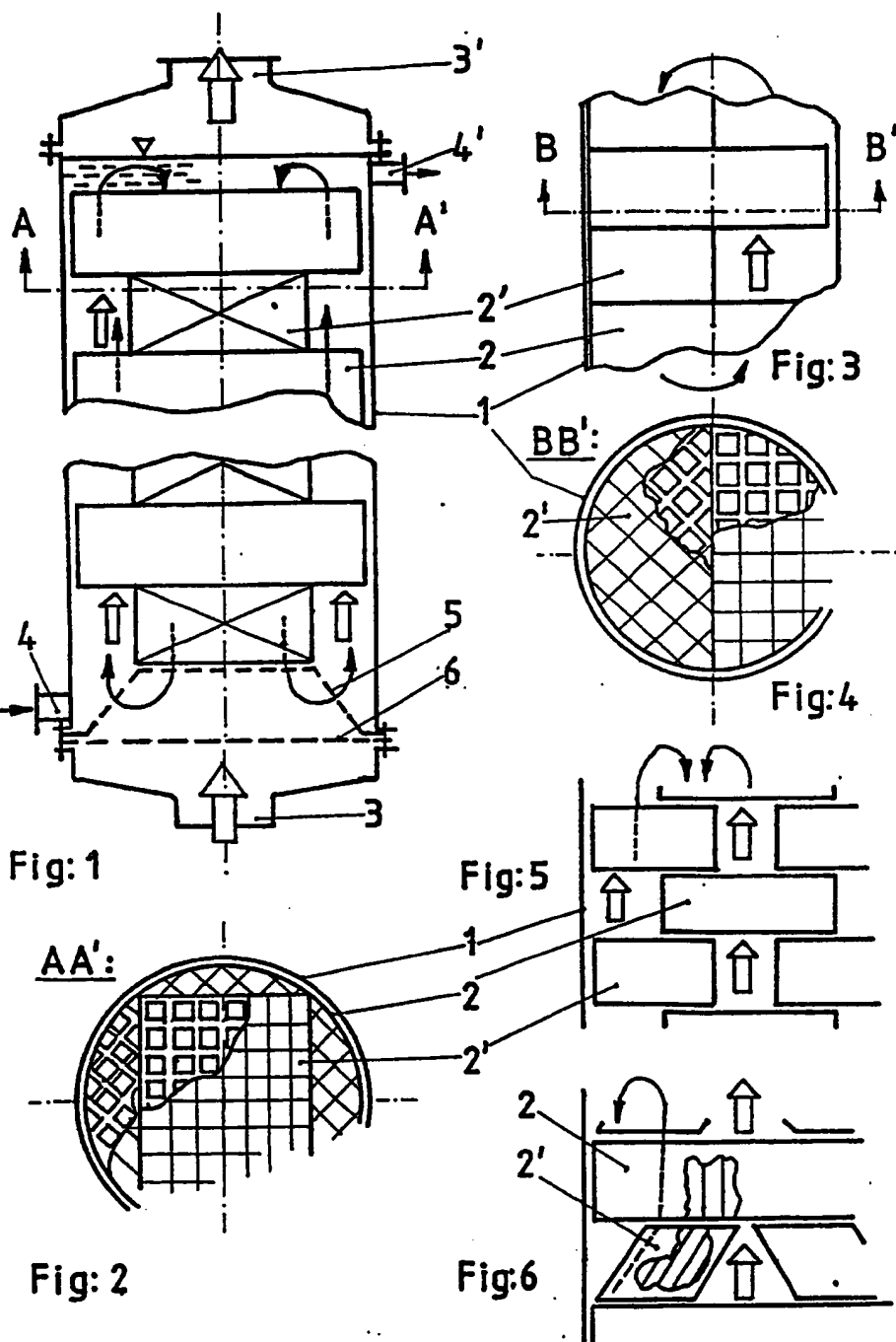


Fig:7

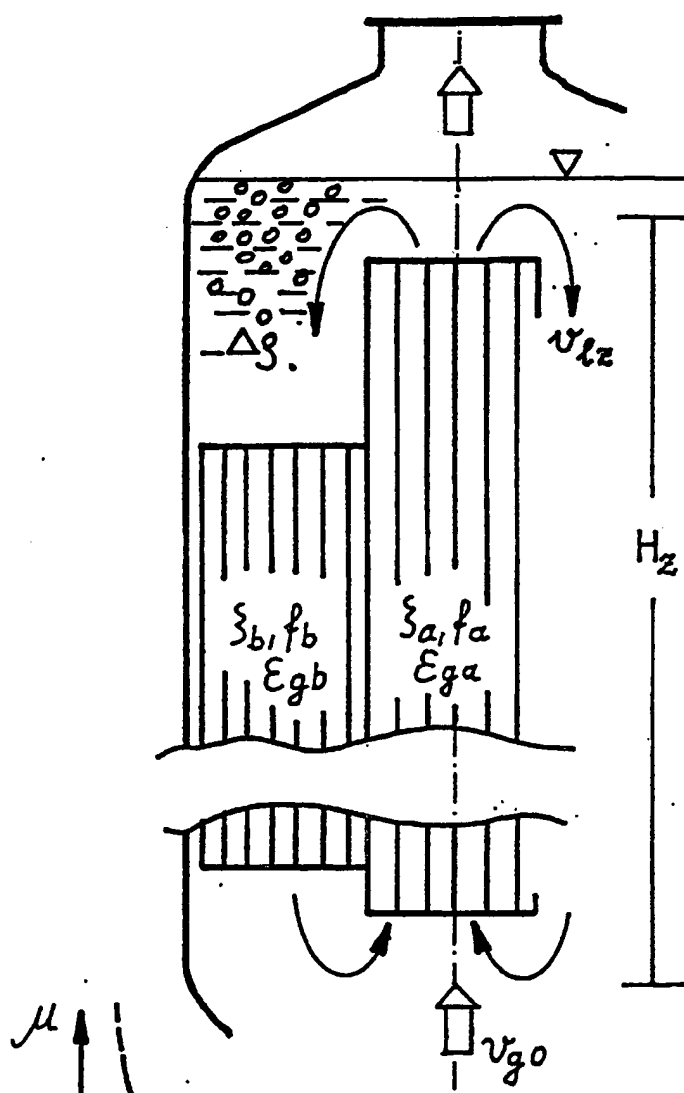
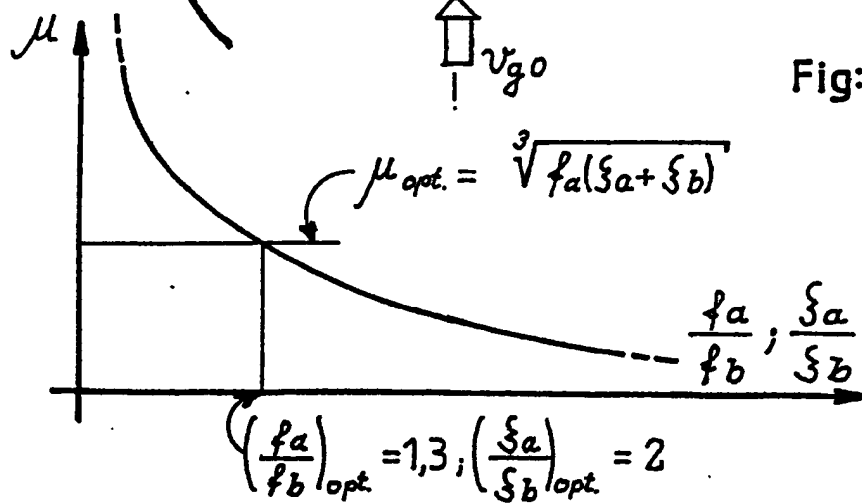


Fig:8



## Patent Application DE 42 43 424 A1

Translated from German into English  
by Phoenix Translations Code No. 3-2940

2110-A WHITE HORSE TRAIL, AUSTIN, TX 78757 Phone: (512) 343-8389  
Toll-free: 877-452-1348, Fax: (512) 343-6721, Email: phoenixtranslations@ev1.net



DEUTSCHES  
PATENTAMT

21 Aktenzeichen: P 42 43 424.6  
22 Anmeldetag: 16. 12. 92  
43 Offenlegungstag: 23. 6. 94

DE 42 43 424 A 1

71 Anmelder:

AUF Adlershofer Umweltschutztechnik- und  
Forschungsgesellschaft mbH, 12489 Berlin, DE

72 Erfinder:

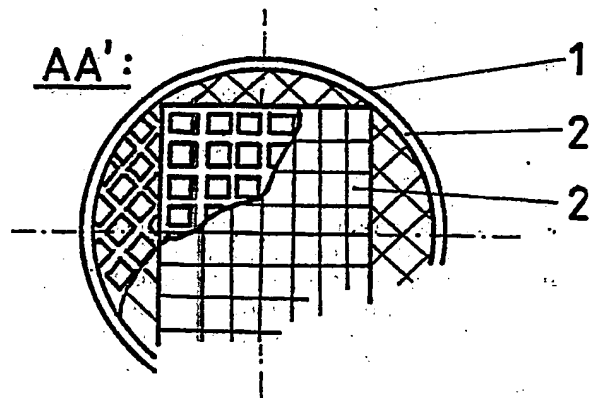
Stach, Helmut, Prof. Dr., O-1190 Berlin, DE; Winkler,  
Kurt, Dr., O-1195 Berlin, DE

54 Verfahren und Vorrichtung zur Reaktionsführung in Schlaufenreaktoren mit Wabenkörpern

67 Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Reaktionsführung in Schlaufenreaktoren mit Wabenkörpern, wobei eine flüssige Phase mit gasförmig-flüssigen Medien in Kontakt gebracht wird.

Bei dem Verfahren wird die effektive Umsetzung eines Gases oder Dampfes an parallel angeströmten, katalytisch wirkenden Wänden in einer Flüssigkeit durch gezielte Strömungsführung unter Berücksichtigung einer konsekutiv ablaufenden Reaktion  $A \rightarrow B \rightarrow C$  dadurch erreicht, daß bei einer schnellen Vorreaktion  $A \rightarrow B$  der Gas-Flüssigkeitsaufstrom in katalytisch wirkenden Wabenkörpern durch Kanäle mit einer insgesamt kleineren Kontaktfläche geführt wird, bei einer schnellen Nachreaktion  $B \rightarrow C$  hingegen die Wechselwirkung der drei Phasen an einer größeren Kontaktfläche erfolgt.

Anwendungsgebiet ist insbesondere die Umsetzung von Synthesegasen zu Kohlenwasserstoffverbindungen unter Entstehung gasförmig-flüssiger Produkte, die Hydoraffination petrochemischer Einsatzstoffe oder die Umweltschutztechnik zur auswaschend-entgiftenden Nachbehandlung von Abgasen.



DE 42 43 424 A 1

Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Reaktionsführung in Schlaufenreaktoren mit Wabenkörpern, wobei eine flüssige Phase mit gasförmig-flüssigen Medien in Kontakt gebracht wird.

Es ist bereits eine Vielzahl von Gas-Flüssigkeits-Reaktoren bekannt, bei denen die Druckenergie eines Gases und/oder der Flüssigkeit in geeigneten Dispergier-  
vorrichtungen dazu genutzt wird, einerseits eine intensive Zerteilung der Phasen zur Erzielung eines effektiven Stoffaustausches zwischen ihnen herbeizuführen und andererseits einen schlaufenförmigen Antrieb der Flüssigkeit, ihre gezielte Rezirkulation im Reaktor, zu bewirken. Zu diesem Ziel werden Leiteinrichtungen im aktiven Reaktorvolumen eingesetzt, die insbesondere die Aufgabe haben, das hydrodynamisch bedingte Verweilzeitspektrum der Phasenanteile dem Zeitablauf von Reaktionsprozessen zwischen Einsatz-, Zwischen- und Zielprodukten zur Erreichung hoher Raum-Zeit-Ausbeuten anzupassen (vgl. W.-D. Deckwer, Reaktionstechnik in Blasensäulen, O. Salle Verlag/Verlag Sauerländer, Frankfurt/Main 1985).

Eine große Zahl dieser Reaktionsprozesse, wie Hydrogenierung, Oxidation und Carbonylierung verlaufen effektiv lediglich an Edelmetallkatalysatoren. Zum Stand der Technik auf dem Gebiet der Katalysatorträger gehören ebenfalls monolithische Wabenkörper, an deren Oberfläche Edelmetallkatalysatoren fixiert sind (vgl. Ch. N. Satterfield, Heterogeneous Catalysis in Practice, McGraw-Hill Book Comp. 1980).

Bei Reaktionen in flüssiger Phase hat der Stofftransport zur katalytisch wirkenden Oberfläche des Trägers hin sowie die Adsorption von Einsatz- oder Zwischenprodukten an dessen aktiven Zentren einen wichtigen Einfluß auf den Stoffumsatz im Reaktor. Mit der Intensivierung dieses Transporteffektes, z. B. durch Erhöhung der Intensität des Kontaktes zwischen Flüssigkeit und Katalysator infolge Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit an der Oberfläche, kann dessen unerwünschter Einfluß, d. h. die Verminderung des Reaktionsumsatzes, eingeschränkt werden. Bei ausreichend schnell ablaufenden Reaktionen ist dabei für einen hohen Umsatz eine nur kurze Laufstrecke des flüssigen bzw. in der Flüssigkeit gelösten Reaktanden an der Katalysatoroberfläche erforderlich, d. h. insgesamt eine kleine Kontaktfläche.

Bei langsameren Reaktionsabläufen wird dagegen eine längere Strecke, verbunden mit einem länger andauernden Kontakt zwischen Reaktand und Katalysator notwendig, also eine größere Kontaktfläche.

Diese Wechselwirkungen zwischen Transport- und Reaktionsschritten werden an katalytisch wirkenden Wabenkörpern in flüssiger Phase noch nicht sicher beherrscht, vor allem, wenn es sich um konsekutiv ablaufende chemische Reaktionen unter Koppelung eines schnellen Reaktionsschrittes mit einem langsamen, z. B. einer Haupt- bzw. Vor- und einer Nachreaktion handelt. Auch der umgekehrte Schritt, die Koppelung einer langsamen mit einer schnellen Reaktion, bedarf einer sorgfältigen Optimierung ihrer zeitlichen Aufeinanderfolge, um optimale Raum-Zeit-Ausbeuten zu erzielen. Für einen Reaktionsablauf zwischen den Komponenten A, B und C mit den Geschwindigkeitskonstanten  $k_1$  und  $k_2$

ist es für unterschiedliche technische Varianten charakteristisch und Stand der Technik, die Reaktionen unspezifisch und unbeeinflußt von  $k_1$  und  $k_2$  (sowohl für eine schnelle Vorreaktion  $k_1 > k_2$  als auch eine schnelle Nachreaktion  $k_1 < k_2$ ) in wabenkörpergefüllten Schlaufenreaktoren zu realisieren.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine Vorrichtung zur effektiven Umsetzung eines teilweise in der Flüssigkeit gelösten Gases oder Dampfes an parallel angeströmten, katalytisch wirkenden Wänden durch eine gezielte Strömungs- und Reaktionsführung zur Verfügung zu stellen, bei der geometrisch unterschiedliche Wabenkörper so regulär geordnet in einem Reaktor vom Kolonnentyp untergebracht sind, daß bei minimalen Strömungswiderständen ein optimales Verhältnis zwischen zwei konsekutiv ablaufenden Reaktionsschritten eingestellt wird.

Erfindungsgemäß wird das dadurch erreicht, daß in einem Gas-Flüssigkeitsreaktor, in einer alternierenden Abfolge und mit ihren Strömungskanälen vorzugsweise vertikal gerichtet, Wabenkörper so übereinander geschichtet werden, daß durch einen Naturumlauf der Flüssigkeit in Form einer Strömungsschleife, in zeitlicher und örtlicher Folge unterschiedliche Anteile der Wandflächen mit Flüssigkeit und Gas in Berührung kommen und damit einzelne Reaktionsschritte auch unterschiedlich beeinflusst ablaufen können. So wird durch die Schichtung von Wabenkörpern unterschiedlicher Querabmessungen erreicht, daß die Gesamtlänge der Strömungskanäle und damit die Größe der für eine katalytisch beeinflusste Reaktionsführung erforderlichen Kontaktfläche im Aufström- bzw. im Abströmbereich der Schleife voneinander abweichen. Bei einer schnell ablaufenden Reaktion A  $\rightarrow$  B, der eine langsamere B  $\rightarrow$  C folgt, wird für den ersten Schritt eine insgesamt kleinere Kontaktfläche, für den zweiten eine entsprechend größere Fläche benötigt. Die technische Realisierung in Form einer Vorrichtung erfolgt in einer Schlaufenführung des Gas-Flüssigkeits-Gemisches, die in Wandnähe des Reaktors aufwärts gerichtet ist. Bei einer langsamen Reaktion A  $\rightarrow$  B hingegen, an die eine schnelle Reaktion B  $\rightarrow$  C anschließt, empfiehlt sich eine umgekehrte Schlaufenführung, nämlich die Verlegung des Aufströmbereiches in den zentralen Teil der geschichteten Wabenkörper, mit der entsprechend größeren Kontaktfläche.

Die Wabenkörper sind zweckmäßig so gestaltet, daß sie — alternierend angeordnet — einerseits den Reaktorquerschnitt ausfüllen, andererseits so Zwischenräume in Nähe der Reaktorwand ausbilden, daß in diesen eine freie konvektive Strömung der Flüssigkeit entsteht. Im Interesse niedriger Strömungswiderstände und optimal hoher Rezirkulationsraten werden die Kanäle der Wabenkörper parallel zur Hauptströmungsrichtung ausgerichtet.

Es können jedoch auch Gruppen von Kanälen alternierend schräg gerichtet sein, geneigt zur Hauptachse des Reaktors hin, oder auch von dieser wegführend, wenn eine größere Rezirkulationsschleife einmal bzw. mehrfach unterteilt werden soll.

Ein Hauptvorteil der Vorrichtung besteht darin, daß entstehende Reaktionskomponenten, wie B und C, teilweise oder gänzlich im Takt ihrer Bildung aus Teilen der

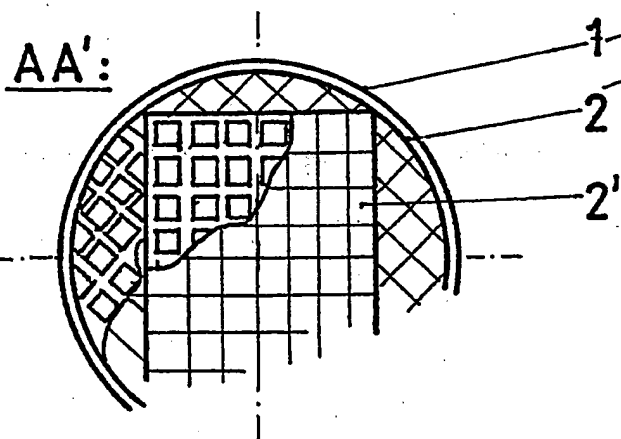
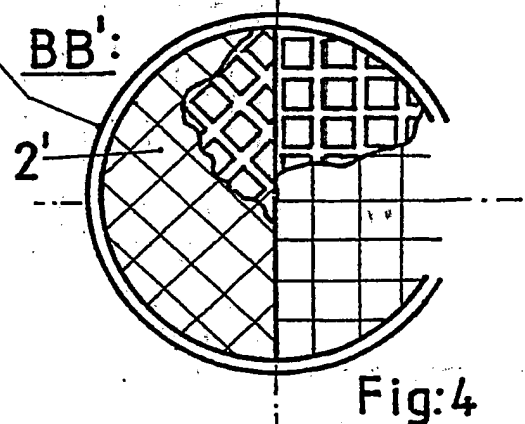
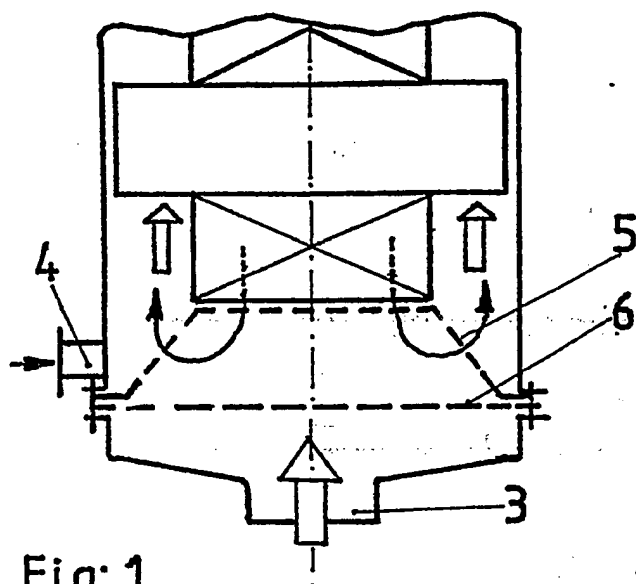
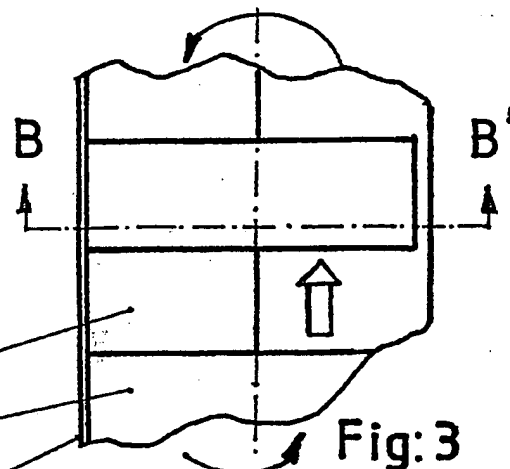
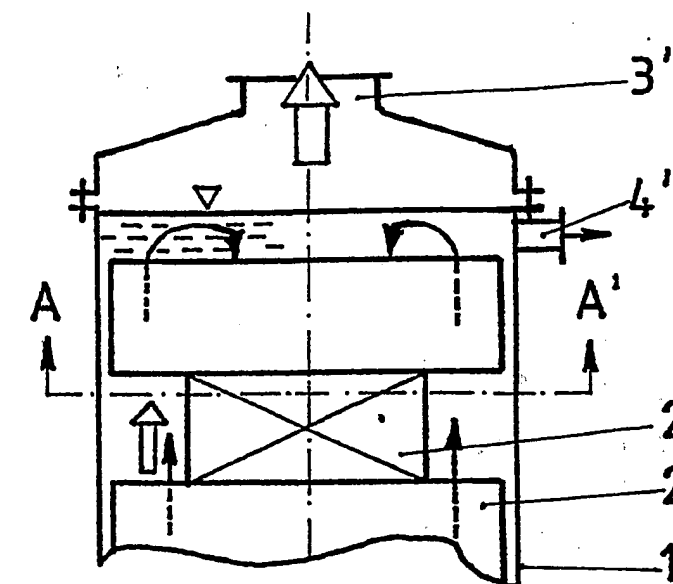


Fig: 5

Fig: 2

Fig: 6

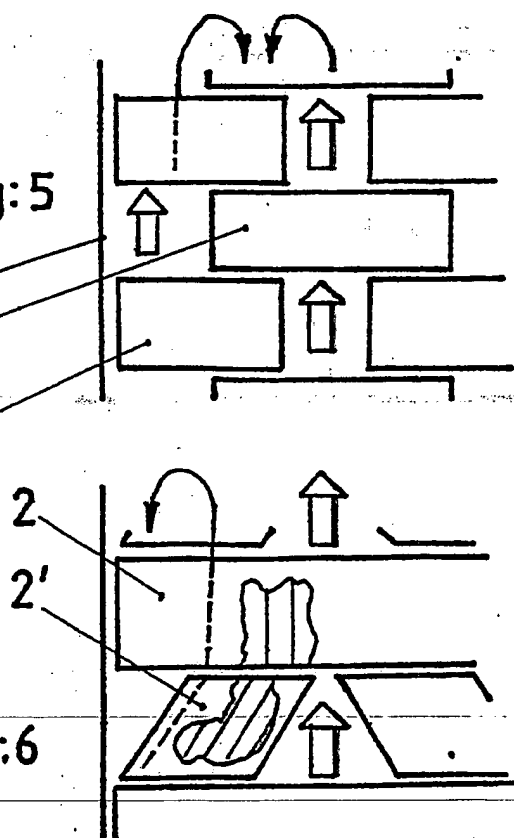


Fig: 7

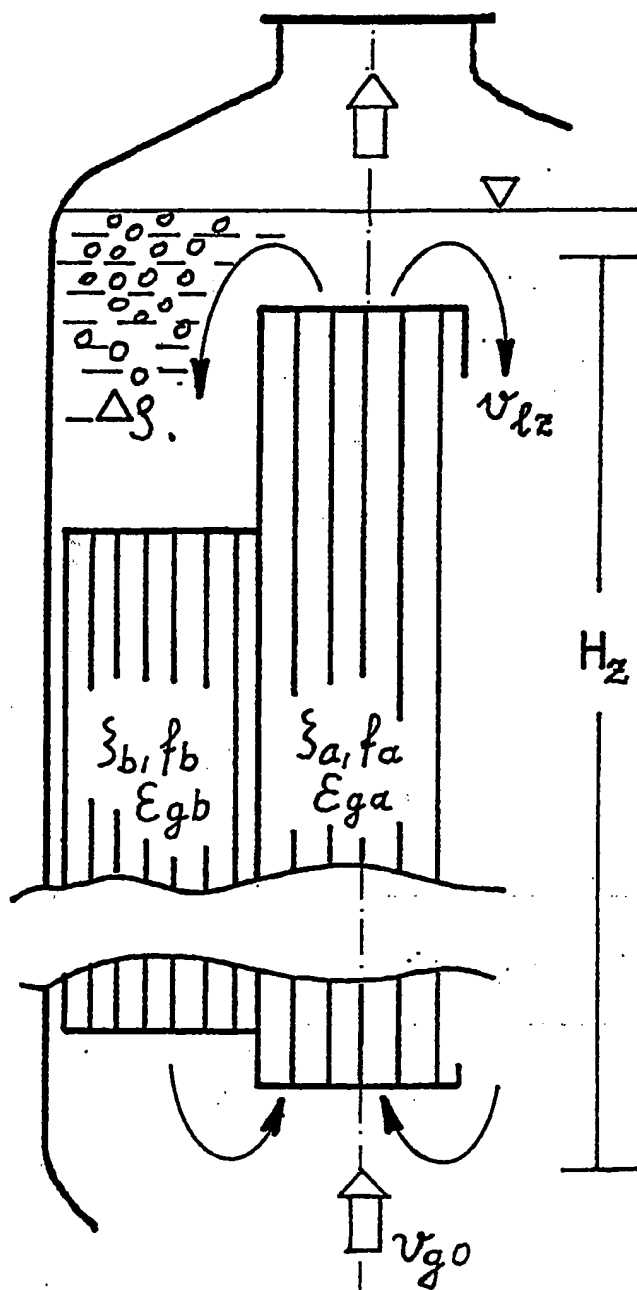
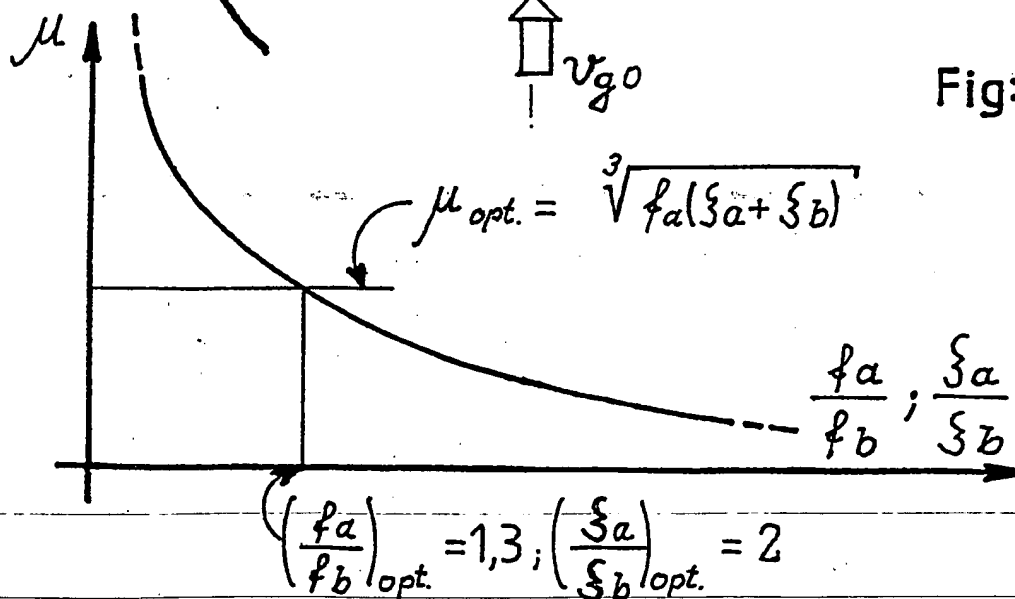


Fig: 8



Strömungsschlaufe abgezogen werden können, so die Komponente B bei einer schnell ablaufenden Reaktion  $A \rightarrow B$  im oberen Reaktorteil des in Reaktorwandnähe befindlichen Aufströmbereiches der Außenschlaufe. Bei einer schnellen Reaktion  $B \rightarrow C$  hingegen kann das Produkt C im unteren Teil der abströmenden Schlaufe abgezogen werden, bzw. auch in mittleren Höhenschnitten des Reaktors aus den freien Räumen zwischen den Wabenkörpern.

Die Größe der Kanalquerschnitte und ihre freie innere Oberfläche bestimmen neben den Durchsätzen für Gas und Flüssigkeit wesentlich die Rezirkulationsgeschwindigkeit innerhalb der Schlaufe sowie deren Dreh-sinn. Dabei können zweckmäßig optimale Betriebsbedingungen für die Durchführung konsekutiver Reaktionen eingestellt werden, indem optimale Widerstandsbeiwerte und Flächenanteile in jedem der zwei Schlaufen-anteile in Abhängigkeit von der jeweiligen Aufgabe für die Reaktionsführung voreingestellt werden.

### Beispiele

Die Erfindung wird an Beispielen näher erläutert. Die zugehörigen Zeichnungen zeigen:

Fig. 1 den erfindungsgemäßen Schlaufenreaktor mit Wabenkörpern, mit peripherer Aufströmzone;

Fig. 2 einen Schnitt AA' nach Fig. 1;

Fig. 3 eine Variante nach Fig. 1, mit exzentrischer Aufströmzone;

Fig. 4 einen Schnitt BB' nach Fig. 3;

Fig. 5 + 6 weitere Varianten nach Fig. 1, ohne und mit seitlicher Strömungsauslenkung;

Fig. 7 schematische Darstellung des Reaktors nach Fig. 1, mit Optimierungsparametern;

Fig. 8 Parameter im Optimierungsfeld nach Fig. 7.

In einem Schlaufenreaktor mit dem Kolonnenmantel 1 (Fig. 1 bis 5) befinden sich in axial alternierender Folge die Wabenkörper 2 und 2' mit einander parallelen, geraden oder schrägen, einander sich nicht überschneidenden Kanälen. Der Reaktor besitzt Vorrichtungen zur Gasführung 3, 3' und zur Flüssigkeitsführung 4, 4' und ist mit einem Tragrost 5 sowie mit einer Dispergiereinrichtung 6 versehen. Gemäß Fig. 2 ist eine alternierende Anordnung der Wabenkörper 2 mit kreisförmigem Querschnitt mit Wabenkörpern 2' quadratischen Querschnitts zweckmäßig. In anderen Varianten (Fig. 3 und 4) wechseln zylinderförmig begrenzte Wabenkörper 2 mit segmentförmig begrenzten Wabenkörpern 2'. Bei Schlaufenreaktoren größeren Durchmessers ist eine schichtweise gepackte Anordnung der Wabenkörper 2, 2' besonders günstig, wobei die Kanäle der Wabenkörper 2' parallel zur Reaktorhauptachse (Fig. 5) oder schräg zu dieser gerichtet (unter einem spitzen Winkel, Fig. 6) verlaufen.

Die Wirkung des erfindungsgemäßen Schlaufenreaktors ist wie folgt: Im Falle einer schnellen, durch die Wabenkörper katalysierten Vorreaktion  $A \rightarrow B$  ( $k_1 > k_2$ ) erzeugt das Gas über die Gaszuführung (3) bei Vorliegen eines geringeren Strömungswiderstandes durch Aufstieg in den wandnahen Bereichen des Reaktors eine hier aufsteigende Flüssigkeitsströmung (Fig. 1). Die geringere Kontaktfläche in den Kanälen des Wabenkörpers ist für eine ausreichende Zwischenproduktbildung B ausreichend. Anteile von B können im Bereich des Flüssigkeitsspiegels über die Flüssigkeitsführung 4' abgezogen werden. Für die langsamere Nachreaktion  $B \rightarrow C$  ( $k_1 < k_2$ ) ist eine größere Kontaktfläche erforderlich, die im zentralen Teil des Reaktors gegeben ist. Das

Endprodukt C wird aus dem Reaktor im unteren Teil entfernt (Abführung nicht eingezeichnet) bzw. teilweise in die Aufströmzone rezirkuliert.

Im Fall einer langsamen Vorreaktion  $A \rightarrow B$  mit anschließender schneller Nachreaktion werden die Strömungskanäle über ihre Querschnittsflächen so angepaßt, daß der zentrale Teil des Reaktors kleinere Strömungswiderstände als in der Randzone aufweist. Der Flüssigkeitsaufstrom erfolgt im zentralen Reaktorteil mit der entsprechend größeren, katalytisch wirkenden Kontaktfläche. Wiederum reichert sich B im oberen, C dagegen im unteren Reaktorteil an. Gemäß Fig. 3 wird dieser Effekt in Reaktoren erreicht, die von einer Zylindergeometrie abweichen. Nach Fig. 5 dienen regulär gepackte Wabenkörper 2 und 2' in größeren Reaktoren dem erfinderischen Ziel, wobei sich (über den Reaktorquerschnitt gesehen) mehrere Schlaufen ausbilden. Durch unter einem spitzen Winkel zur Reaktorhauptachse schräggestellte Kanäle in einzelnen Wabenkörpern 2' wird erreicht, daß an den dafür vorgesehenen Stellen benachbarte Schlaufen miteinander kommunizieren (Fig. 6).

Maßgeblich die Funktionsweise des Schlaufenreaktors beeinflussende Parameter zeigen Fig. 7 und Fig. 8.

Darin bedeuten:

$V_{g0}$  — die Gasleerrohrgeschwindigkeit,

$V_{lz}$  — die Flüssigkeitsrezirkulationsgeschwindigkeit,

$H_z$  — die Höhe der Rezirkulationszone,

$D$  — den Reaktordurchmesser,

$\xi_f, \xi_g$  — den Widerstandsbeiwert und den Flächenanteil der Wabenkörper, sowie das holdup des Gases, bezogen jeweils auf die Aufströmzone a und die Abströmzone b (vgl. schematische Darstellung in Fig. 7)

$\Delta p$  — die absolute Dichtedifferenz zwischen diesen beiden Zonen,

$\rho_l$  — die Flüssigkeitsdichte,

$\mu$  — die Durchflußzahl.

Entsprechend der Untersuchung von M. Kraume und P. Zehner, Chemie-Ingenieur-Technik, Heft 4 (1989)

"Modellierung der Fluidodynamik in Blasensäulen", wird die Zirkulationsgeschwindigkeit in Schlaufenreaktoren ohne Wabenkörper mittels der Beziehung

$$V_{lz} = \sqrt{\frac{2\Delta p}{f\xi\rho_l}} \cdot gD (V_{g0} - \xi_g V_{gs})$$

dargestellt. Durch Minimieren einer zugehörigen Durchflußzahl unter Berücksichtigung von Auf- und Abströmzone (a, b) werden optimale Parameterbeziehungen erhalten, die eine besonders günstige Betriebsweise des Schlaufenreaktors mit Wabenkörpern gestatten. Insbesondere gilt  $(f_a/f_b)_{opt} = 1,3$  und  $(\xi_a/\xi_b)_{opt} = 2$  (Fig. 8).

### Bezugszeichenliste

1 Kolonnenmantel

2, 2' Wabenkörper

3, 3' Gasführung

4, 4' Flüssigkeitsführung

5 Tragrost

6 Dispergiervorrichtung

A, A'; B, B' Schnitte

a, b Auf- und Abströmzone



VgO Gasleerrohrgeschwindigkeit  
 Vz Flüssigkeitsrezirkulationsgeschwindigkeit  
 D Reaktordurchmesser  
 Hz Höhe der Rezirkulationszone  
 $\xi$ , f, eg Widerstandsbeiwert und Flächenanteil der Wabenkörper sowie holdup des Gases, bezogen jeweils auf die Aufströmzone a und die Abströmzone b  
 $\Delta p$  absolute Dichtedifferenz zwischen diesen beiden Zonen  
 $\mu$  Durchflußzahl  
 k Geschwindigkeitskonstante  
 A, B, C Reaktionskomponenten

# Patentansprüche

1. Verfahren zur Reaktionsführung in Schlaufenreaktoren mit Wabenkörpern, wobei eine flüssige Phase zusammen mit gasförmig-flüssigen Einsatz-, Zwischen- und Zielprodukten durch das Einsatzgas und/oder eine injizierte Flüssigkeit anteilig in Rezirkulationskreisläufen geführt wird, dabei geordnet geschichtete, strukturierte, katalytisch wirkende, Kanäle aufweisende Wabenkörper durchdringt, räumlich getrennte Aufström- und Abströmbereiche ausbildend, zur Durchführung konsekutiv ablaufender Reaktionen vom Typ  $A \rightarrow B \rightarrow C$  (mit den zugehörigen Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten  $k_1$  und  $k_2$ ), dadurch gekennzeichnet, daß

- im Fall einer schnellen Vorreaktion ( $A \rightarrow B$ ,  $k_1 > k_2$ ) der Aufstrom durch erste Kanäle mit einer insgesamt kleineren katalytischen Kontaktfläche und zusätzliche Freiräume geführt wird und der Abstrom durch zweite Kanäle mit einer größeren Kontaktfläche erfolgt, wobei erste und zweite Kanäle in Gruppen zusammengefaßt und räumlich voneinander getrennt sind, und
- im Fall einer schnellen Nachreaktion ( $B \rightarrow C$ ,  $k_1 < k_2$ ) umgekehrt der Aufstrom durch erste Kanäle mit einer größeren Kontaktfläche erfolgt und für den Abstrom diejenigen Kanäle unter Ergänzung durch zusätzliche Freiräume vorgesehen sind, die insgesamt über die kleinere Kontaktfläche verfügen.

2. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß in einer axial alternierenden Folge Wabenkörper (2) und (2') innerhalb eines Reaktors untergebracht sind, die in ihren Querabmessungen unterschiedliche Größen besitzen und den Kolonnenmantel (1) gänzlich oder teilweise ausfüllen.

3. Vorrichtung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß sich zwischen dem Kolonnenmantel (1) und den Wabenkörpern (2') Zwischenräume in Form von Freiräumen befinden, die — über die Wabenkörper (2) alternierend — einer oder mehreren parallel zur vertikalen Kolonnenhauptachse verlaufenden gemeinsamen Achsen des Reaktors zugeordnet sind.

4. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Achsen von Wabenkörpern (2') im Vergleich mit den parallel zur Hauptachsrichtung verlaufenden Wabenkörpern (2), zumindest teilweise im Gesamtverbund der Wabenkörper (2) und (2'), anders als parallel verlaufen, dabei vorzugsweise unter einem spitzen Winkel.

5. Vorrichtung nach Anspruch 2 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß Wabenkörper (2) und (2') unter-

schiedliche Kanalabmessungen und unterschiedlich große innere Kontaktflächen besitzen.

6. Vorrichtung nach Anspruch 2 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Wabenkörper (2) und (2'), zumindest für gruppenweise zusammengefaßte, insgesamt jedoch räumlich voneinander getrennte Kanäle unterschiedliche Kanalabmessungen und unterschiedlich große innere Kontaktflächen besitzen.

7. Vorrichtung nach Anspruch 2 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die in unterschiedlichen Strömungszonen, wie der Aufström- (a) und der Abströmzone (b) gelegenen Kanäle der Wabenkörper (2) und (2') Widerstandsbeiwerte  $\xi$  und Flächenanteile f besitzen, deren Verhältnisse durch

$$\frac{\xi_a}{\xi_b} = 2 \quad \text{und} \quad \frac{f_a}{f_b} = 1,2$$

festgelegt sind.

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen